

A KÉMIAI MECHANIZMUSOK SZEREPE A LEVEGŐMINŐSÉG-MODELLEZÉSBEN

Kovács Attila⁽¹⁾ , Leelőssy Ádám⁽¹⁾ , Mészáros Róbert⁽¹⁾ , Lagzi István László⁽²⁾ 

⁽¹⁾ELTE Meteorológiai Tanszék, 1117 Budapest, Pázmány Péter sétány 1/A

⁽²⁾BME, Fizika Tanszék, 1111 Budapest, Budafoki út 8.

e-mail: attila23.8@gmail.com, leelossyadam@gmail.com,

mrobi@nimbus.elte.hu, istvanlagzi@gmail.com

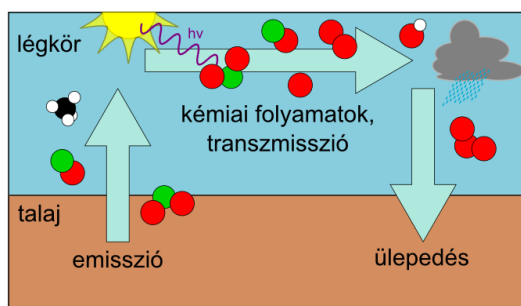
Bevezetés

A légszennyezés által okozott egészségügyi károknak és a számítástechnika fejlettségének köszönhetően, az időjárás előrejelzések mellett manapság már jelentős igény mutatkozik a levegőminőség előrejelzésekre is. Az ilyen előrejelzések megvalósításához szükség van egy numerikus modellrendszerre, amely képes elvégezni a komplex meteorológiai és levegőkémiai számításokat. A modell futtatásához nélkülözhetetlenek az ellenőrzött, nemzetközi kutatócsoportok által létrehozott emissziós nyilvántartások (más szóval kataszterek), amelyek a lehető legtöbb antropogén és természetes forrásból származó légszennyező kibocsátását tartalmazzák egy kiterjedt rácson.

A WRF-Chem modell

Az egyik legelterjedtebb korszerű időjárás előrejelző modell az NCAR¹ és a NOAA² által kifejlesztett WRF³ mezoskálájú, euleri szemléletű numerikus modell. Ezt a modellt szabad felhasználhatósága (nyílt forráskódja) és fejleszthetősége miatt tudományos kutatásokban és operatív feladatok során egyaránt széles körben alkalmazzák.

A WRF modell levegőkémiai kiegészítése a WRF-Chem (Grell et al., 2005), amit ún. *on-line integrált* módon csatoltak a meteorológiai modellhez, azaz a két egység azonos rácson, azonos időlépésben végzi el a szükséges számításokat. Ennek nagy előnye, hogy nem csak a meteorológia hatását vehetjük figyelembe a levegőkémiaira, hanem a visszahatást is. A teljes modellrendszer képes a légszennyezők emissziójának, transzmissziójának, kémiai átalakulásainak és ülepedésének szimulációjára (1. ábra), így az elsődleges légszennyezők mellett kialakuló másodlagos légszennyezők (pl. az ózon) mennyisége is becsülhető.



1. ábra: Sematikus ábra a légszennyezők folyamatairól a légkörben.

¹ National Center for Atmospheric Research, Nemzeti Léggörkutató Központ

² National Oceanic and Atmospheric Administration, Nemzeti Éghajlati Adatközpont

³ Weather Research and Forecasting

A WRF-Chem-ben számos kémiai mechanizmus alkalmazására nyílik lehetőség, ezek lényegében olyan fájlcsomagok, amelyekben az adott mechanizmusban figyelembe vett nyomgázok, aeroszol részecskék közötti kémiai reakciók találhatók. A fájlok kiegészíthetők új szennyezőkkel, reakciókkal, és szerkeszthetők is a reakciósebességi állandók vagy a sztöchiometriai együtthatók tekintetében.

A WRF-Chem modellel korábbi futtatásaink során aeroszol részecskék terjedését vizsgáltuk városi (Kovács et al., 2016), valamint regionális skálán (Leelőssy et al., 2017).

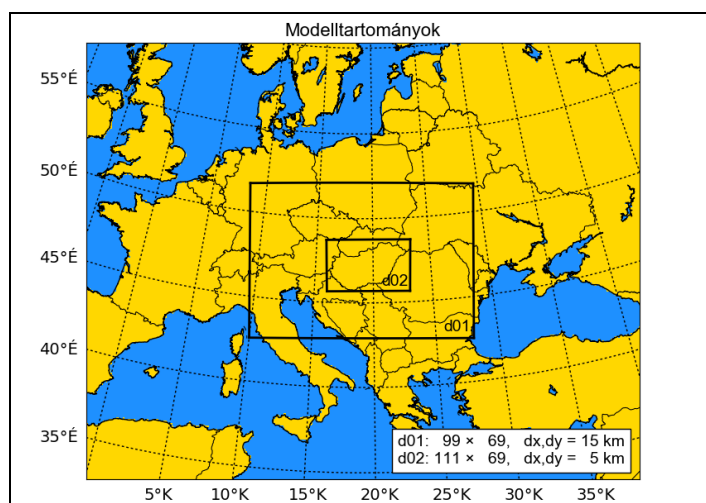
A bemenő adatok

A kémiai kiegészítés nélküli WRF modell számára elegendő megadni a meteorológiai és a földrajzi bemenő adatokat, a WRF-Chem esetében ez kiegészül az emissziós mezőkkel is. A bemenő meteorológiai adatokat a GFS⁴ modell adta 3 órás idő-, és $0,25^\circ \times 0,25^\circ$ térbeli felbontással.

Az emissziós mezőt a NECD-IIR⁵ (2015) szolgáltatotta $0,1^\circ \times 0,1^\circ$ felbontással, a különböző forrástípusok (ipari, mezőgazdasági, közlekedési, természetes stb.) szerinti bontásban. Az adatok minden rácspontra a teljes 2015-ös évre vonatkoznak, így pontos időbeli eloszlás hiányában a legegyszerűbb közelítést alkalmaztuk, és az éves értékeket elosztva az egy évben lévő órák számával, időben állandó értékeket állítottunk be a legalsó modellszintre. A modellben felhasznált légszennyezők: NO_x (nitrogén-oxidok), NMVOC (illékony szerves anyagok, kivéve metán), CO (szén-monoxid), PM₁₀ (10 µm-nél kisebb effektív átmérőjű aeroszol részecskék). A NO_x emisszió az NO és az NO₂ emissziójából tevődik össze, amit 50–50%-nak vettünk a modellben.

A modellbeállítások

A modellel két tartományon végeztünk számításokat: a külső, ún. szülő tartomány (15 km-es horizontális felbontás) Közép-Európa területét foglalta magába, és jelentett peremfeltételt a belső, Magyarország területét reprezentáló beágyazott tartomány számára (5 km-es horizontális felbontás) (2. és 3. ábra). A kimenő adatok időbeli felbontása 1 óra volt.



2. ábra: A WRF-Chem két modelltartománya: d01 és d02.

⁴ Global Forecast System

⁵ National Emission Ceiling Directive - Informative Inventory Report



3. ábra: A WRF-Chem beágyazott, 5 km horizontális felbontású rácsa.

A modellt négy napra futtattuk, az emissziós adatbázisnak megfelelő 2015-ös évre, november 01. 00 UTC-től november 05. 00 UTC-ig, amely időszakból az első nap a levegőkémiai számítások nélküli ún. felpörgési (spin-up) szakaszt jelentette a meteorológia számára, az azt követő napokra pedig a modell már figyelembe vette a kémiai folyamatokat is. A második nap a levegőkémia számára jelentett felpörgési időt, így a végső modelleredményekből ezt a napot is kihagytuk.

A modellfutások beállításai a fizikai parametrizációkban megegyeztek (1. táblázat), és csak a kémiai mechanizmus csomagban és a fotolízis fajtájában tértek el egymástól (2. táblázat). A kémiai mechanizmusok rendelkeznek KPP, ún. kinetikus előfeldolgozó rendszerrel (*Kinetic PreProcessor*), amely Fortran programozási nyelvre fordítja le a kémiai reakciókból és reakciósebességi együtthatókból képzett differenciál-egyenletek halmazát. Ezek megoldása lehetővé teszi a kinetikus rendszer időbeli integrálását (Sandu & Sander, 2006).

1. táblázat: A futtatások során alkalmazott fizikai modellbeállítások.

Mikrofizikai séma	WRF Single-Moment 6-class scheme (Hong et al., 2010)
Hosszúhullámú sugárzási séma	RRTM (<i>Rapid Radiative Transfer Model</i>) (Mlawer et al., 1997)
Rövidhullámú sugárzási séma	Old Goddard scheme (Chou & Suarez, 1994)
Felszíni réteg séma	Monin-Obukhov Janjić Eta similarity scheme (Janjić, 1994)
Szárazföld-felszíni séma	Noah Land Surface Model (Chen et al., 1996)
Planetáris határreteg séma	Mellor-Yamada-Janjić scheme (Hu et al., 2010)
Cumulus parametrizáció	New Grell 3D scheme (Grell & Dévényi, 2002)
Modellszintek száma	40

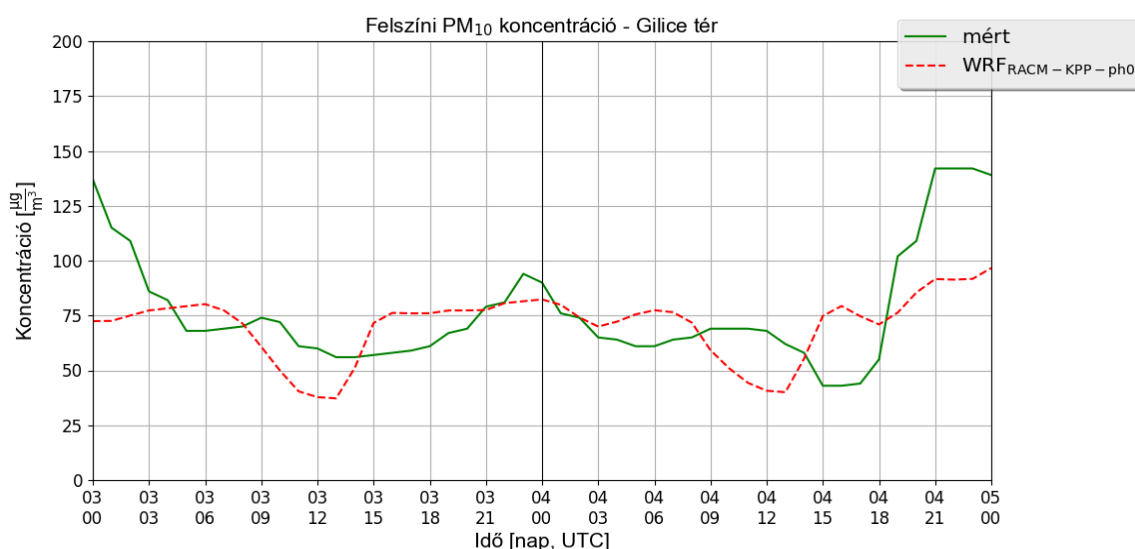
2. táblázat: A futtatások során alkalmazott kémiai modellbeállítások.

Kémiai mechanizmus	RADM2 (<i>Regional Acid Deposition Model 2nd-generation</i>) (Stockwell et al., 1990)
	RADM2-KPP
	CBMZ (<i>Carbon-Bond Mechanism version Z</i>) (Zaveri & Peters, 1999)
	CBMZ-KPP
Fotolízis beállítás	RACM-KPP (<i>Regional Atmospheric Chemistry Mechanism</i>) (Stockwell et al., 1997)
	Madronich TUV (<i>Troposphere Ultraviolet and Visible</i>) (Madronich & Weller, 1990)
	Fast-J (Barnard et al., 2004)
	Madronich F-TUV (<i>Fast Troposphere Ultraviolet and Visible</i>) (Tie et al., 2003)

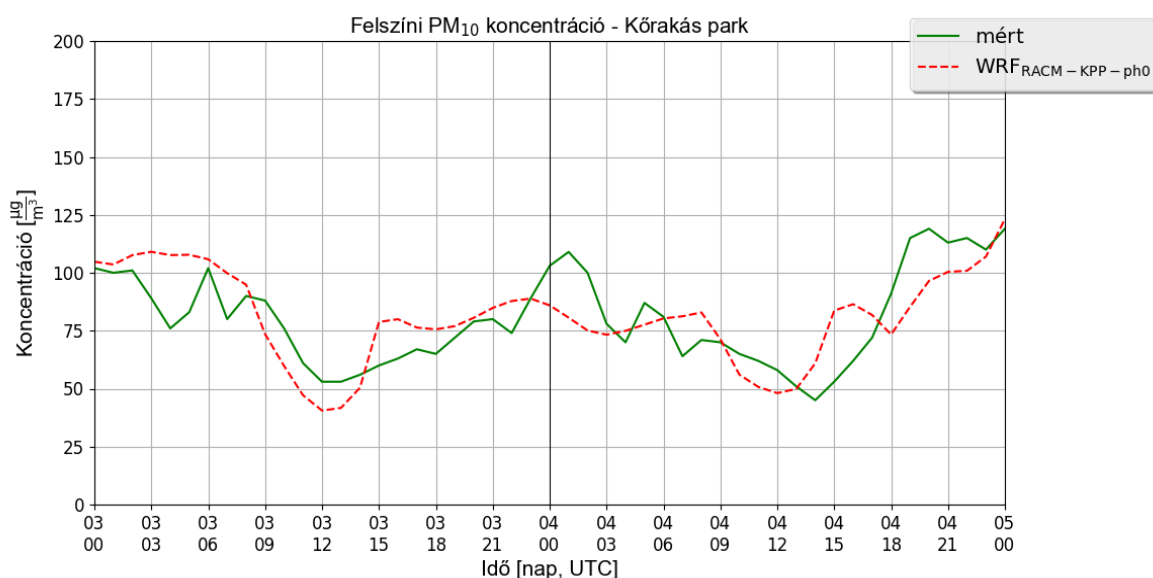
Eredmények

A légszennyezők modellezett koncentrációinak verifikálásához az OLM (Országos Légszennyezettségi Mérőhálózat) automata mérőállomásainak adatait használtuk fel. Budapesten belül hat (Széna tér, Gilice tér, Kőrakás park, Teleki tér, Káposztásmegyer, Pesthidegkút), valamint vidéken további öt (Győr, Sopron, Debrecen, Pécs, Miskolc) mérőállomás adatait vettük össze a mérőállomás földrajzi koordinátáinak megfelelő modell-rácspontra szimulált koncentrációk időbeli meneteivel.

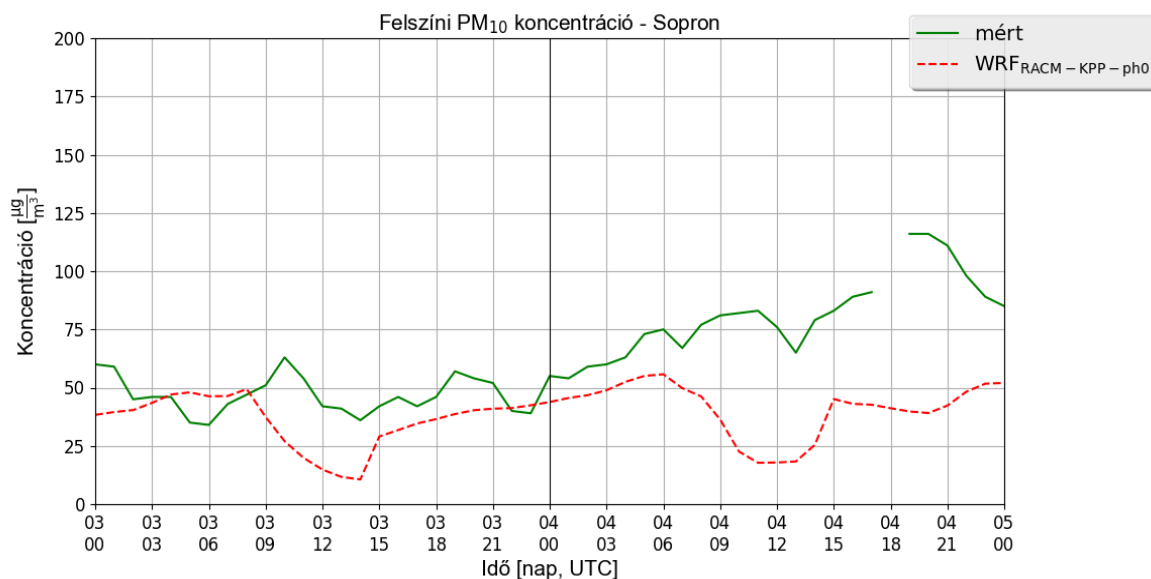
A következőkben az automata mérőállomások szimulált PM₁₀ és O₃ koncentrációi közül mutatunk be néhányat. A grafikonokon jól látható az aeroszol részecskék esti maximum-, és nappali minimumkoncentrációja (4–6. ábra), valamint az O₃ koncentráció nappali megnövekedése, és éjjeli lecsökkenése (7–9. ábra). Az aeroszol részecskék szimulációihoz egyedül a RACM-KPP kémiai mechanizmus fotokémia nélküli aeroszol egységét használtuk.



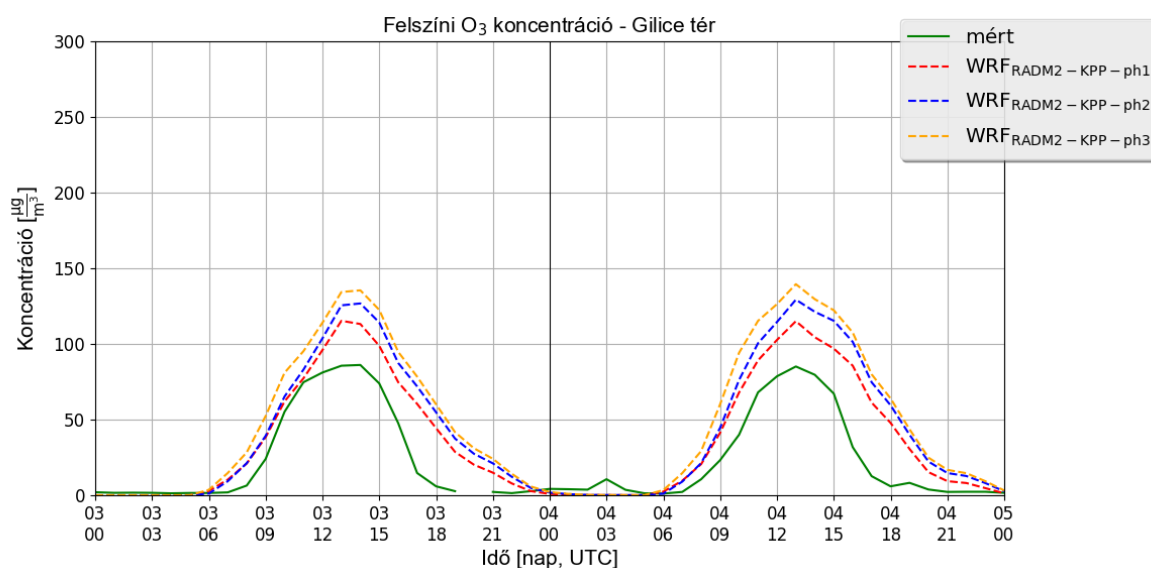
4. ábra: Szimulált PM₁₀ koncentráció a 2015. november 3. 00 UTC és november 5. 00 UTC közötti időszakra, a Gilice térre.



5. ábra: Szimulált PM₁₀ koncentráció a 2015. november 3. 00 UTC és november 5. 00 UTC közötti időszakra, a Kőrakás parkra.

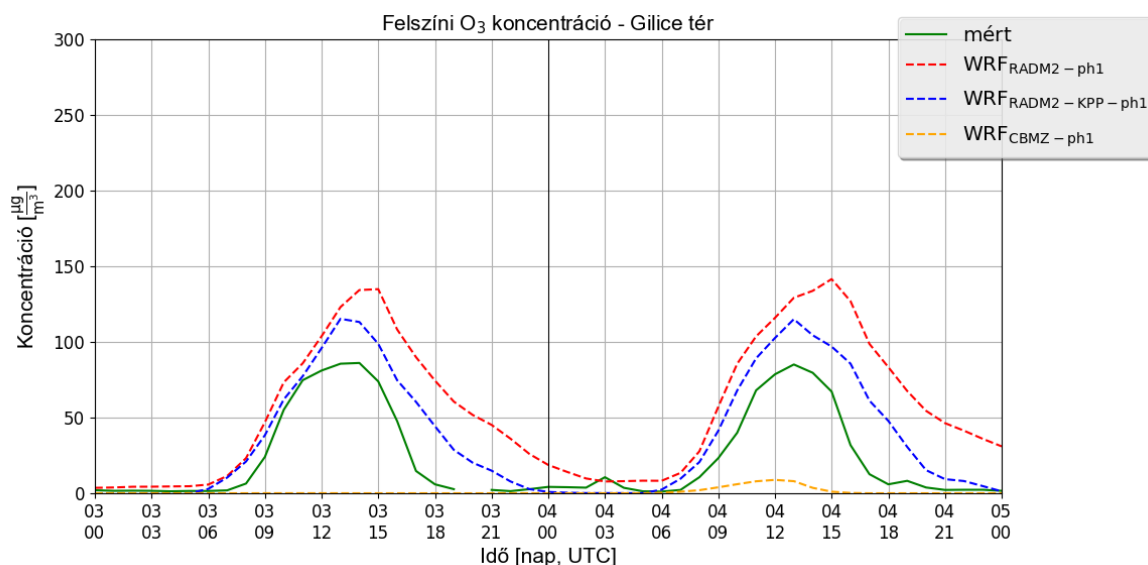


6. ábra: Szimulált PM_{10} koncentráció a 2015. november 3. 00 UTC és november 5. 00 UTC közötti időszakra, Sopronra.

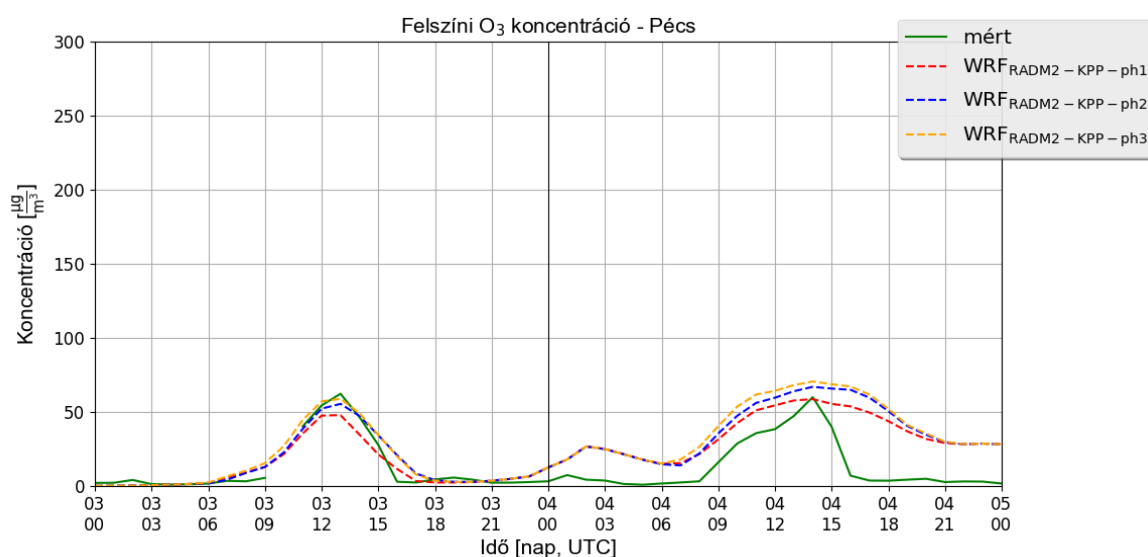


7. ábra: Szimulált O_3 koncentráció a 2015. november 3. 00 UTC és november 5. 00 UTC közötti időszakra, a Gilice térre, a RADM2-KPP kémiai mechanizmus alkalmazása esetén.

A CBMZ kémiai mechanizmus nem mutatott érzékenységet a fotolízis beállítás változtatására, és szinte alig produkált ózont, minden mérőállomás esetén jócskán alábecsülve a mérési adatokat – ez jól látható a 8. ábrán. A RADM2 kémiai mechanizmus beállítása mellett több ózon keletkezett, mint az előfeldolgozó-rendszerrel ellátott RADM2-KPP változata esetén. A RADM2-KPP kémiai mechanizmust nem változtatva a legtöbb O_3 a Madronich F-TUV fotolízis beállítás alkalmazása mellett jött létre a modellben, a legkevesebbet pedig ennek „lassabb”, Madronich TUV változata adta (előbbi 17 hullámhossz tartománnyal (bin) rendelkezik, míg az utóbbi 140-nel).



8. ábra: Szimulált O_3 koncentráció a 2015. november 3. 00 UTC és november 5. 00 UTC közötti időszakra, a Gilice térre, a Madronich TUV fotolízis beállítása esetén.



9. ábra: Szimulált O_3 koncentráció a 2015. november 3. 00 UTC és november 5. 00 UTC közötti időszakra, Pécsre a RADM2-KPP kémiai mechanizmus alkalmazása esetén.

Összességében elmondható, hogy a szimulált O_3 koncentrációk mindegyik mérőállomás esetében felülbecsülték a valós mérési adatokat. Ennek oka valószínűleg az, hogy a WRF nehezen képes olyan kisebb skálájú meteorológiai folyamatokat szimulálni, mint a köd, amely csökkenti a besugárzás mértékét, és így befolyásolja a fotokémiai reakciókat, ezzel pedig a fotokémiai úton keletkező O_3 koncentrációját.

Köszönetnyilvánítás

A kutatásokat a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alap K-116506, K-120605 és K-128805 pályázatai támogatták.

Hivatkozások

- Barnard, J.C., Chapman, E.G., Fast, J.D., Schmelzer, J.R., Slusser, J.R., Shetter, R.E., 2004: An evaluation of the FAST-J photolysis algorithm for predicting nitrogen dioxide photolysis rates under clear and cloudy sky conditions. *Atmospheric Environment*, 38(21): 3393–3403. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.03.034>
- Chen, F., Mitchell, K., Schaake, J., Xue, Y., Pan, H., Koren, V., Duan, Y., Ek, M., Betts, A., 1996: Modeling of land-surface evaporation by four schemes and comparison with FIFE observations. *J. Geophys. Res.*, 101: 7251–7268. <https://doi.org/10.1029/95JD02165>
- Chou, M.D., Suarez, M.J., 1994: An efficient thermal infrared radiation parameterization for use in general circulation models. 104606, NASA Technical Memorandum, 3, p85.
- Grell, G.A., Dévényi, D., 2002: A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques. *Geophysical Research Letters*, 29(14): 38-1–38-4. <https://doi.org/10.1029/2002GL015311>
- Grell, G.A., Peckham, S.E., Schmitz, R., McKeen, S.A., Frost, G., Skamarock, W.C., Eder, B., 2005: Fully coupled “online” chemistry within the WRF model. *Atmospheric Environment*, 39(37): 6957–6975. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.04.027>
- Hong, S.Y., Lim, K.S.S., Lee, Y.H., Ha, J.C., Kim, H.W., Ham, S.J., Dudhia, J., 2010: Evaluation of the WRF double-moment 6-class microphysics scheme for precipitating convection. *Advances in Meteorology*, Article ID 707253, 10p., <https://doi.org/10.1155/2010/707253>
- Hu, X.M., Nielsen-Gammon, J.W., Zhang, F., 2010: Evaluation of three planetary boundary layer schemes in the WRF model. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 49(9): 1831–1844. <https://doi.org/10.1175/2010JAMC2432.1>
- Janjić, Z.I., 1994: The step-mountain eta coordinate model: Further developments of the convection, viscous sublayer, and turbulence closure schemes. *Monthly Weather Review*, 122(5): 927–945. [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(1994\)122<0927:TSMECM>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1994)122<0927:TSMECM>2.0.CO;2)
- Kovács A., Mészáros R., Leelőssy Á., Lagzi I., 2016: Air pollution modeling in urban environment using WRF-Chem model. In: Proceedings, 17th Int. Conf. on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes, 367–370.
- Leelőssy Á., Mészáros R., Kovács A., Lagzi I., Kovács T., 2017: Numerical simulations of atmospheric dispersion of iodine-131 by different models. *Plos One*, 12(2): Paper e0172312. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0172312>
- Madronich, S., Weller, G., 1990: Numerical integration errors in calculated tropospheric photodissociation rate coefficients. *J. Atmos. Chem.*, 10: 289–300. <https://doi.org/10.1007/BF00053864>
- Mlawer, E.J., Taubman, S.J., Brown, P.D., Iacono, M.J., Clough, S.A., 1997: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102(D14): 16663–16682. <https://doi.org/10.1029/97JD00237>
- Sandu, A., Sander, R., 2006: Technical note: Simulating chemical systems in Fortran90 and Matlab with the Kinetic PreProcessor KPP-2.1. *Atmos. Chem. Phys.*, 6: 187–195. <https://doi.org/10.5194/acp-6-187-2006>
- Stockwell, W.R., Kirchner, F., Kuhn, M., Seefeld, S., 1997: A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *J. Geophys. Res.*, 102: 25847–25879. <https://doi.org/10.1029/97JD00849>
- Stockwell, W.R., Middleton, P., Chang, J.S., Tang, X., 1990: The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. *J. Geophys. Res.*, 95: 16343–16367. <https://doi.org/10.1029/JD095iD10p16343>

- Tie, X., Madronich, S., Walters, S., Zhang, R., Racsh, P., Collins, W., 2003: Effect of clouds on photolysis and oxidants in the troposphere. *J. Geophys. Res.*, 108: 4642., D20. <https://doi.org/10.1029/2003JD003659>
- Zaveri, R.A., Peters, L.K., 1999: A new lumped structure photochemical mechanism for largescale applications. *J. Geophys. Res.*, 104: 30387–30415. <https://doi.org/10.1029/1999JD900876>
-

ORCID

Kovács A.  <https://orcid.org/0000-0002-8087-7093>
Leelőssy Á.  <https://orcid.org/0000-0001-9583-0127>
Mészáros R.  <https://orcid.org/0000-0002-0550-9266>
Lagzi I.L.  <https://orcid.org/0000-0002-2303-5965>